

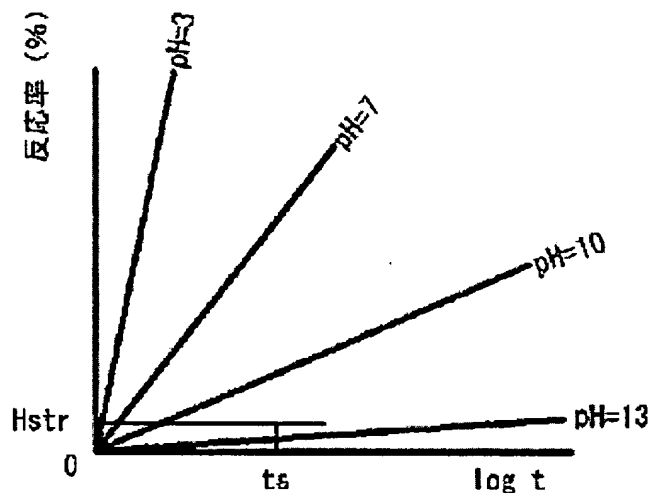
**SYSTEM FOR PRODUCING HYDROGEN GAS**

**Patent number:** JP2002128502  
**Publication date:** 2002-05-09  
**Inventor:** NAKANISHI HARUMICHI; MATSUMOTO SHINICHI  
**Applicant:** TOYOTA MOTOR CORP  
**Classification:**  
- international: C01B3/04; C01B3/06  
- european:  
**Application number:** JP20000318727 20001019  
**Priority number(s):** JP20000318727 20001019

Report a data error here

**Abstract of JP2002128502**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To stably produce hydrogen gas complying with a demand by using metal hydride called chemical hydride. **SOLUTION:** The fluid mixed with metal hydride producing hydrogen by hydrolysis and the water is stored in a tank. On this occasion, they are stored in a strong alkaline state in which the reaction speed is extremely low by harnessing pH dependence of a reaction rate of metal hydride. The raw material fluid complying with the hydrogen demand is supplied into a reactor. Water is supplied apart the raw material in order to decrease pH for a sufficient reaction speed in the reactor. Using fluid facilitates the supply of a fixed quantity of the raw material and the volume of generated hydrogen can be elastically controlled by pH control.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-128502

(P2002-128502A)

(43) 公開日 平成14年5月9日 (2002. 5. 9)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

テームコード<sup>\*</sup> (参考)

C 0 1 B 3/04  
3/06

C 0 1 B 3/04  
3/06

Z

審査請求 未請求 請求項の数11 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願2000-318727 (P2000-318727)

(22) 出願日 平成12年10月19日 (2000. 10. 19)

(71) 出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72) 発明者 中西 治通

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(72) 発明者 松本 信一

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(74) 代理人 100096817

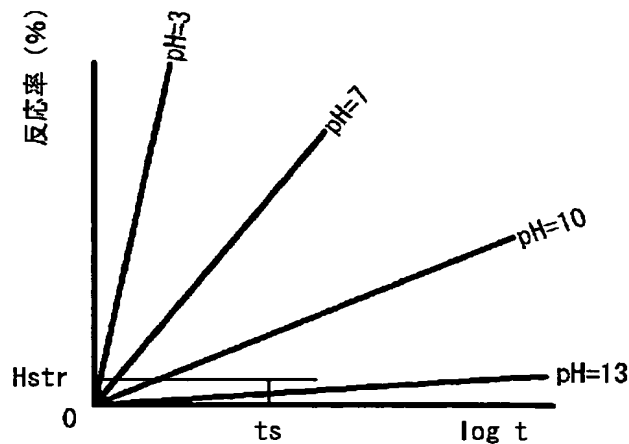
弁理士 五十嵐 孝雄 (外3名)

(54) 【発明の名称】 水素ガス生成システム

(57) 【要約】

【課題】 ケミカルハイドライドと呼ばれる金属水素化物を用いて要求量に応じた水素ガスを安定的に生成する。

【解決手段】 加水分解して水素を生成する金属水素化物と、水とを混合した流体でタンクに貯蔵する。この際、金属水素化物の反応率にpH依存性があることを利用し、反応速度が極めて低くなる強アルカリ状態で貯蔵する。流体状の原料を水素要求量に応じて反応器に供給する。原料と別に水を供給し、反応器のpHを十分な反応速度が得られる値に低下させる。流体により原料の定量供給が容易になるとともに、pH制御により、水素生成量を柔軟に制御することが可能となる。



**【特許請求の範囲】**

【請求項 1】 水素ガス生成システムであって、  
金属水素化物を加水分解または熱分解して水素を生成させる反応部と、

該反応部に担持または充填された触媒と、  
前記金属水素化物、および前記分解反応に供される水または熱、の少なくとも一方の量を、水素ガスの要求量に応じて制御する制御部とを備える水素ガス生成システム。

【請求項 2】 請求項 1 記載の水素ガス生成システムであって、  
前記金属水素化物、および前記分解反応に供される水または熱、の少なくとも一方の量と、水素ガスの要求量との関係を記憶する記憶手段を備え、  
前記制御部は、該記憶手段を参照して前記制御を実行する水素ガス生成システム。

【請求項 3】 水素ガス生成システムであって、  
金属水素化物を加水分解して水素を生成させる反応部と、  
該反応部の pH を制御する pH 制御部とを備える水素ガス生成システム。

【請求項 4】 請求項 3 記載の水素ガス生成システムであって、  
前記 pH 制御部は、水素ガスの要求量の増大に伴って前記 pH を低下させる水素ガス生成システム。

【請求項 5】 請求項 3 記載の水素ガス生成システムであって、  
前記 pH 制御部は、水素ガスの要求量の低減に伴って前記 pH を増大させる水素ガス生成システム。

【請求項 6】 請求項 3 記載の水素ガス生成システムであって、  
水素ガスの要求量およびその変化量の少なくとも一方に基づき、前記反応部の pH 目標値を設定する pH 目標値設定部を備え、  
前記 pH 制御部は、該 pH 目標値となるよう前記制御を実行する水素ガス生成システム。

【請求項 7】 請求項 3 記載の水素ガス生成システムであって、  
前記反応部に前記金属水素化物と水の混合物を原料として供給する原料供給部を備え、  
前記 pH 制御部は、前記混合物の pH を、前記反応部への供給前よりも低下させる水素ガス生成システム。

【請求項 8】 請求項 7 記載の水素ガス生成システムであって、  
前記原料は、強アルカリ性に保たれている水素ガス生成システム。

【請求項 9】 請求項 8 記載の水素ガス生成システムであって、  
前記 pH 制御部は、前記原料に水を加えることによって前記制御を行う水素ガス生成システム。

【請求項 10】 金属水素化物の加水分解または熱分解による水素ガスの生成方法であって、(a) 前記金属水素化物、および前記分解反応に供される水または熱、の少なくとも一方の量を、水素ガスの要求量に応じて制御する工程と、(b) 触媒の存在下で、前記金属水素化物の加水分解または熱分解を行う工程とを備える水素ガスの生成方法。

【請求項 11】 金属水素化物の加水分解による水素ガスの生成方法であって、  
該加水分解時の pH を制御する工程を備える水素ガスの生成方法。

**【発明の詳細な説明】****【0001】**

【発明の属する技術分野】本発明は、金属水素化物を加水分解または熱分解して、水素ガス、特に燃料電池用の水素リッチな燃料ガスを生成する技術に関する。

**【0002】**

【従来の技術】水素と酸素の電気化学反応により起電力を得る燃料電池では、燃料として水素ガスが必要となる。水素ガスを生ずるシステム例として、金属水素化物、いわゆるケミカルハイドライドを用いた構成が知られている。

【0003】ケミカルハイドライドとは、アルカリ金属または錯金属と水素の化合物であり、加水分解または熱分解して水素を生成する性質を有する物質である。エネルギー密度が非常に高い物質として知られている。昨今の研究により、ケミカルハイドライドとして、 $\text{NaH}$ 、 $\text{NaBH}_4$ 、 $\text{NaAlH}_4$ 、 $\text{LiAlH}_4$ 、 $\text{LiBH}_4$ 、 $\text{LiH}$ 、 $\text{CaH}_2$ 、 $\text{AlH}_3$ 、 $\text{MgH}_2$  などの金属水素化物が知られている。

【0004】金属水素化物を加水分解する場合、反応による生成物が金属水素化物の表面を覆い、途中で反応が停止してしまう。反応率、即ち全金属水素化物中で反応した物質の割合は、通常、約 50% 程度しか得られないことが確認されている。また、金属水素化物に水を供給し、反応が始まると、人為的に反応を停止させることはできない。これらの理由に基づき、金属水素化物を利用した水素ガス生成システムでは、間欠的に水素を生成する方式が採られていた。つまり、必要とされる水素ガスの量に関わらず、一定量の金属水素化物に十分な水または熱を加え、水素を生成させる。こうして生成された水素は、一旦、タンク等に貯蔵され、徐々に使用される。水素の貯蔵量が所定の基準を下回った時に、再び水素ガスの生成が行われる。

**【0005】**

【発明が解決しようとする課題】しかし、上述の間欠的な水素生成方法は、無駄が多かった。水素ガスをまとめて発生させるため、使用されずに残存または遺漏する水素が生じるからである。従って、金属水素化物を利用した水素ガス生成システムにおいては、必要量の水素ガス

を供給しつつ、かかる無駄を抑制することが望まれていた。

#### 【0006】

【課題を解決するための手段およびその作用・効果】上記課題を解決するため、本発明の水素ガス生成システムでは、第1の構成として、金属水素化物を加水分解または熱分解して水素を生成させる反応部と、該反応部に担持または充填された触媒と、前記金属水素化物、および前記分解反応に供される水または熱、の少なくとも一方の量を、水素ガスの要求量に応じて制御する制御部とを備えるものとした。金属水素化物は、 $\text{NaBH}_4$  または  $\text{NaAlH}_4$  など、先に列挙した物質を含め加水分解または熱分解して水素を生成する種々の物質を用いることができる。

【0007】加水分解については、要求量に応じて水の量を制御しつつ金属水素化物に供給する態様、金属水素化物の量を制御しつつ水に供給する態様、および水および金属水素化物の双方の量を制御しつつ供給する態様が挙げられる。熱分解については、熱量を制御しつつ金属水素化物に供給する態様が挙げられる。

【0008】触媒の存在下では、加水分解、熱分解は比較的速やかに進み、金属水素化物のほぼ全量が反応可能である。かかる環境下では、反応に供される物質または熱の量を制御することにより、発生する水素量の制御が可能である。金属水素化物に対して過剰の水または熱の供給を回避することにより、必要以上の水素の生成を抑制することができ、無駄を抑制できる。

【0009】反応に利用可能な触媒は、金属水素化物の種類および加水分解、熱分解の別によって選択される。一般にルテニウム系、チタニア系、白金系などの触媒が知られている。

【0010】金属水素化物に加えられる水または熱と発生する水素量との関係は、金属水素化物の種類に応じて大きく異なる。また、その関係は非線形であることが多い。従って、上記制御においては、金属水素化物、および前記分解反応に供される水または熱、の少なくとも一方の量と、水素ガスの要求量との関係を予め記憶しておき、この関係に基づいて実行することが望ましい。この関係は、予め実験等によって特定することができる。また、この関係は、反応時における温度その他の環境条件によっても影響されるため、環境条件をパラメータとして多元的に記憶させるものとしてもよい。

【0011】本発明の水素ガス生成システムは、第2の構成として、金属水素化物を加水分解して水素を生成させる反応部と、該反応部のpHを制御するpH制御部とを備えるものとした。

【0012】pH制御部は、反応部のpHを一定の目標値に制御する態様、水素ガスの要求量の増大に伴って前記pHを低下させる態様、水素ガスの要求量の低減に伴って前記pHを増大させる態様、またはこれらの組み合

わせでの制御を行うことができる。

【0013】金属水素化物の加水分解の反応速度は、pHに依存することが知られている。アルカリ性、即ちpHが高い程、反応速度は低下し、酸性、即ちpHが低い程、反応速度が増加する。従って、加水分解時にpHを制御すれば、単位時間に生成される水素量を制御することができ、生成された水素の無駄を抑制することができる。例えば、pHを一定の目標値に制御すれば、金属水素化物および水の量による水素生成量の制御の安定化を図ることができる。要求量の増減に伴ってpHを変化させれば、反応速度を変化させることができ、要求量に応じた水素を生成させることができる。

【0014】第2の構成においては、水素ガスの要求量およびその変化量の少なくとも一方に基づき、前記反応部のpH目標値を設定し、それを目標値としてpHの制御を実行してもよい。pH目標値は、要求量等に応じた反応速度が得られるpHとの関係を予め実験等によって設定、記憶しておき、これを参照して設定することができる。水素ガス要求量は、反応速度とともに原料の量によっても制御可能であるから、原料量およびpHとを組み合わせて制御してもよい。例えば、原料量およびpHと要求量との関係をマップで記憶しておき、現状の運転状態から最も迅速に移行可能な運転ポイントに移行する制御が可能である。かかる制御により、反応の応答性を向上させることができる。

【0015】第2の構成においては、反応部に前記金属水素化物と水の混合物を原料として供給する原料供給部を備え、pH制御部によって、反応部における混合物のpHを供給前よりも低下させるものとしてもよい。金属水素化物と水の混合物を原料とすることにより、反応部への定量供給が容易になるとともに、金属水素化物と水の拡散性を向上させることもでき、反応促進にも寄与する。但し、この場合は、金属水素化物と水を混合した時点で、反応が生じ、不要な水素生成が行われる可能性がある。上述の構成によれば、反応速度が十分に低いpHで混合物を供給し、反応部でpHを低下させることにより、十分な反応速度を得ることが可能となる。

【0016】例えば、原料は、強アルカリ性に保っておくことにより、反応速度を十分に低下させることが可能である。原料のpHは、システムの構成によって設定可能である。金属水素化物と水とを分離貯蔵しておき、反応部への供給前に混合するシステム構成では、混合物としての放置期間が比較的短いため、pHは強アルカリ性の範囲でも若干、低めに設定することができる。好ましくはpH10よりも大きい範囲で設定可能である。pHを低く設定することにより、反応部での反応促進が容易になる利点がある。金属水素化物と水とを混合物の状態で貯蔵しておく場合には、原料のpHを実用的な時間内に有意な水素生成を伴わない程度に高く設定しておくことが望ましい。かかる場合には、好ましくは原料のpH

を 13 以上とすることが望ましい。

【0017】原料の pH は、金属水素化物および水に、アルカリ性の化合物を適宜加えることにより、調整できる。例えば、金属水素化物として、 $\text{NaBH}_4$  を用いる場合には、水酸化ナトリウム等を目標 pH に応じて加えればよい。

【0018】原料が強アルカリ性で保存されている場合には、原料に水を加えることによって pH を低下させることができる。実用的な反応速度を得るため、pH が 10 以下になるように制御することが好ましい。

【0019】本発明は、水素ガス生成システムとしての態様の他、水素ガスの生成方法として構成することが可能である。また、生成された水素ガスの供給を受けて発電する燃料電池と組み合わせて燃料電池システムとして構成してもよい。更に、その燃料電池システムを搭載した移動体など種々の態様で構成することが可能である。

#### 【0020】

【発明の実施の形態】本発明の実施例を以下の項目に分けて説明する。

#### A. 第 1 実施例：

##### A1. システム構成：

##### A2. pH 制御：

##### A3. pH 制御の変形例：

##### A4. 変形例：

#### B. 第 2 実施例：

##### B1. システム構成：

##### B2. 水素ガス生成処理：

#### 【0021】A. 第 1 実施例：

A1. システム構成：図 1 は第 1 実施例としての水素ガス生成システムの概略構成を示す説明図である。本実施例では、金属水素化物を加水分解して水素ガスを生成するシステム例を示す。生成された水素は、燃料電池 1 のアノード 1a に供給される。燃料電池 1 は、アノード 1a に供給された水素と、カソード 1b に供給される空気中の酸素の電気化学反応によって発電する。燃料電池 1 の運転は、内部に CPU, RAM, ROM を備えるマイクロコンピュータで構成された制御ユニット 10 によって制御される。

【0022】本実施例では、金属水素化物として、 $\text{NaBH}_4$  を用いた。この物質は、次の反応式に従って加水分解し、水素を生成する。



$\text{NaBO}_2$  は水を取り込む性質があるため、実際には、1 モルの  $\text{NaBH}_4$  に対し、2 モル以上の  $\text{H}_2\text{O}$ 、通常 6 モル程度が必要となることが知られている。以下、 $\text{NaBH}_4$  を燃料と呼び、 $\text{NaBO}_2$  を生成物と呼ぶものとする。

【0023】本実施例では、反応に供される燃料および水は混合された状態で原料タンク 11 に貯蔵される。燃料と水の混合物を以下、原料と呼ぶものとする。原料

は、放置しておけば、上述の加水分解が進み、水素を生成する。但し、この反応は、pH 依存性がある。本実施例では、反応速度が極端に遅い pH 条件で原料を貯蔵している。

【0024】図 2 は反応速度の pH 依存性を示す説明図である。金属水素化物の pH 依存性については、次式の関係が知られている。

$$\log(t_{1/2}) = \text{pH} - (3.4T - 1.92)$$

$t_{1/2}$  は、金属水素化物の半減時間である。T は絶対温度 (K) である。図 2 は、この関係を図示したものである。反応率とは、全金属水素化物中の反応済みの金属水素化物の割合を意味する。図示する通り、金属水素化物は、pH が低い時、即ち酸性状態で反応速度が高く、pH が高い時、即ちアルカリ性状態で反応速度が低いことが分かる。

【0025】本実施例では、かかる関係に基づき、原料を強いアルカリ性状態で貯蔵するものとした。貯蔵時の pH は次の手順で設定した。原料を貯蔵した後、使用されるまでの標準的な時間に基づき水素生成量の評価基準となる時間  $t_s$ 、その期間における水素生成量が原料タンクの容積等に基づいて定まる許容上限値を超えない反応率  $H_{str}$  を設定し、これを超えない範囲で貯蔵時の pH を設定した。pH を 13 以上とすれば、実用上、反応が停止していると思わせる程度の反応速度になることが確認されており、本実施例では、約 pH 13 で原料を貯蔵するものとした。燃料、水に  $\text{NaOH}$  を約 5 重量% 加えることにより、この pH は実現される。添加するアルカリ性物質は、 $\text{NaOH}$  に限られるものではないが、本実施例では、燃料  $\text{NaBH}_4$  と共通の金属 Na を含む物質として  $\text{NaOH}$  を選択した。

【0026】図 2 に示した pH 依存性は、温度が約 50℃ 以下の環境下で確認されている。この温度を超えると、pH 13 で貯蔵された原料であっても、反応が有意な速度で進行する。本実施例では、原料タンク 11 は、温度が 50℃ 以下に保たれるよう断熱構造を備えている。

【0027】図 1 に戻り、本実施例のシステム構成について説明する。原料は、原料タンク 11 から配管によって反応器 20 に運搬される。途中には、原料の供給量を調整するためのバルブ 12 が設けられている。反応器には、水タンク 13 から水が供給される。水を供給する配管には、供給量を調整するためのバルブ 14 が設けられている。バルブ 12、14 の開度は、それぞれ制御ユニット 10 によって電子的に制御される。

【0028】この水は、加水分解に使用されるとともに、反応器 20 内の pH を調整する役割を果たす。先に説明した通り、原料は反応速度が極めて低くなる強アルカリ状態で保存されている。原料に水を加えて希釈することにより、反応器 20 内の pH を低下させ、反応速度が高い pH 状態に移行させることができる。水による希

積では、 $\text{pH}$  7 が限界であるが、実用上、十分な反応速度が得られることが確認されている。供給される水の量は、原料の量および要求水素量によって制御される。この制御を実現するために、反応器 20 には、 $\text{pH}$  を検出する  $\text{pH}$  センサ 21 が備えられており、検出値が制御ユニット 10 に入力される。制御方法については、後述する。

【0029】反応器 20 では、先に示した加水分解反応が生じ、水素が生成される。短期間に大量の水素が生成され、高い流速で流出するため、流出する水素ガスには、水、生成物などの不純物が混在した状態となる。このガスは分離器 30 に供給され、生成物、水、水素に分離される。分離器 30 は、水素ガスの流速を抑制することで、不純物を分離する機構である。流速を抑制するための格子、フィン、じゃま板などを内部に設けることにより構成される。分離器 30 で分離された水素は、燃料電池 1 のアノード 1a に供給される。水は、水タンク 13 に循環され、再び反応に供される。

【0030】A2.  $\text{pH}$  制御：図 3 は水素ガス生成処理のフローチャートである。先に説明した通り、本実施例では、強アルカリ性で貯蔵されている原料の  $\text{pH}$  を調整して要求量に見合った水素を生成する。この制御は、制御ユニット 10 が図 3 に示す処理を実行することにより実現される。

【0031】処理が開始されると、制御ユニット 10 は、まず水素要求量を入力する（ステップ S10）。水素要求量は、外部からの指示によって入力されるものとしてもよいし、燃料電池 1 の運転状態から制御ユニット 10 が設定するものとしてもよい。水素要求量に関連のある他のパラメータ、例えば燃料電池 1 の要求電力などで間接的に設定することも可能である。

【0032】次に、水素要求量に基づき、制御ユニット 10 は、反応器 20 に供給する原料量、および  $\text{pH}$  の目標値を設定する（ステップ S12）。本実施例では、図中に示すマップに基づいて設定するものとした。加水分解の反応速度は、反応器 20 の  $\text{pH}$  に依存する。水素生成量は、 $\text{pH}$  と反応に供される原料量とをパラメータとして定まる。反応速度が遅い場合でも、原料量を増やすことにより単位時間当たりの水素生成量を増大させられる。原料量が少ない場合でも、反応速度を高めることにより、単位時間当たりの水素生成量を増大させられる。本実施例では、かかる観点から、原料量と  $\text{pH}$  をパラメータとして所定の水素要求量を満足する運転ポイントをマップとして用意した。曲線 c1～c4 はそれぞれ単位時間当たりに生成される水素量が一定となる運転ポイントを示している。曲線 c4、c3、c2、c1 の順に生成量が増大する。図中に示す折れ線 LIM は、原料量および  $\text{pH}$  の限界値を意味する。この範囲でマップは作成されている。

【0033】制御ユニット 10 は、現状の運転ポイン

ト、即ち、反応器 20 に供給されている原料量と  $\text{pH}$  と、水素要求量に基づいて目標ポイントを設定する。例えば、現状の運転ポイントが図中のポイント P1 であり、曲線 c2 に相当する量の水素が要求された場合を考える。目標運転ポイントは、曲線 c2 上のいずれのポイントに設定しても構わない。本実施例では、現状の運転ポイント P1 から最も移行しやすいポイント为目标ポイント P2 として設定するものとした。ポイント P1 から P2 への移行に伴う原料量の変化量  $\Delta R$ 、 $\text{pH}$  の変化量  $\Delta p$  に基づき、それぞれの変化を生じさせるための所要時間を評価し、所要時間が極小となる運転ポイント为目标ポイントとして選択するのである。こうすることにより、応答性の向上を図ることができる。制御ユニット 10 は、設定された運転ポイントに相当する状態に、バルブ 12、14 を制御して処理を終了する。

【0034】 $\text{pH}$  制御には、大きく 2 つの利点がある。一つは、 $\text{pH}$  を大きくすることにより、実質的に反応を停止させることができる点である。本実施例では、かかる利点を活用することにより、金属水素化合物と水を混合して流体の状態で貯蔵した。流体の形で保存することにより、原料の定量供給が容易になり、反応を安定化させることができる。2 つ目として、 $\text{pH}$  制御で反応速度を制御することにより、要求水素量に応じた水素を安定供給することが可能となる利点がある。更に原料供給量の制御も組み合わせれば、応答性を向上させることも可能である。これらの利点に加えて、本実施例のシステムでは、 $\text{pH}$  制御に利用される水は循環可能であり、装置の小型化を図ることができる利点もある。

【0035】A3.  $\text{pH}$  制御の変形例：実施例では、マップに基づいて運転ポイントを設定する場合を例示した。水素の生成量に基づいて、原料および  $\text{pH}$  をフィードバック制御するものとしてもよい。かかる制御を変形例として例示する。

【0036】図 4 は変形例としての水素ガス生成処理のフローチャートである。処理が開始されると、制御ユニット 10 は、水素要求量  $H_{req}$  を入力する（ステップ S20）。また、現在の水素発生量  $H_{out}$  を入力する（ステップ S21）。水素発生量  $H_{out}$  は、反応器 20 または分離器 30 内の圧力、燃料電池 1 の電力など水素発生量に関連する物理量をパラメータとして検出することができる。こうして入力された 2 つの値  $H_{req}$ 、 $H_{out}$  の比較によって（ステップ S22）、制御ユニット 10 は、 $\text{pH}$  および原料量の制御を行う。

【0037】「 $H_{req} < H_{out}$ 」の場合、つまり水素要求量よりも過剰の水素が発生している場合は、水素の生成を抑制する処理を実行する。反応率を低下させるため、 $\text{pH}$  を増大させる（ステップ S23）。 $\text{pH}$  の増大量は、一定の刻みで行うものとしてもよいし、 $H_{req}$ 、 $H_{out}$  の差分から設定してもよい。本実施例では、水タンク 13 から供給される水量を抑制することに

より、pHの増大を図る。pHが所定の上限閾値pHUを超えた場合には（ステップS24）、pHのみの制御では、十分に水素発生量を抑制できないと判断し、原料量を低減させる（ステップS25）。原料量の低減も、一定の刻みで行ってもよいし、Hreq、Houtの差分から設定してもよい。上限閾値pHUは、理論的に実現可能な上限値に設定する必要はなく、pHのみの調整によっては、実用的な応答性で水素生成量を抑制することが困難と判断される値を任意に設定可能である。

【0038】「Hreq>Hout」の場合、つまり水素要求量よりも水素の発生量が不足している場合は、水素の生成を促進する処理を実行する。反応率を増大させるため、pHを低下させる（ステップS26）。pHの低下量は、一定の刻みで行うものとしてもよいし、Hreq、Houtの差分から設定してもよい。本実施例では、水タンク13から供給される水量を増大することにより、pHの低下を図る。pHが所定の下限値pHLを下回った場合には（ステップS27）、pHのみの制御では、十分な水素を発生させられないと判断し、原料量を増加させる（ステップS28）。原料量の増加も、一定の刻みで行ってもよいし、Hreq、Houtの差分から設定してもよい。下限閾値pHLは、理論的に実現可能な下限値に設定する必要はなく、pHのみの調整によっては、実用的な応答性で水素生成量を増加させることが困難と判断される値を任意に設定可能である。

【0039】「Hreq=Hout」の場合は、現状の運転ポイントをそのまま維持する。Hreq、Houtの大小関係に応じて、それぞれ運転ポイントが設定されると、制御ユニット10は、各運転ポイントを実現するよう、バルブ12、14を制御する（ステップS29）。

【0040】なお、Hreq、Houtの比較に応じた制御は、一定のヒステリシスを持たせることが望ましい。また、「Hreq=Hout」の判断は、両者の差違が、実用上、十分に小さいとみなせるか否かで行えばよい。

【0041】図4の制御例では、pH制御を原料量の制御よりも優先する場合を例示した。つまり、pH制御の結果、pHが所定の閾値pHU、pHLを超えた場合に原料制御を行うものとした。逆に、原料量の制御を優先して行うものとしてもよい。

【0042】A4. 変形例：実施例（図3）および変形例（図4）では、要求水素量を実現するようにpH制御を行う場合を例示した。反応器20のpHは、一定の目標値となるよう制御してもよい。例えば、pH10を目標値とするものとすれば、原料と一定の比率で水を供給すれば良い。要求水素量に応じた水素を発生する際には、原料量を水素要求量に応じて制御する。この制御は、例えば、pH10における反応率に基づき、原料量と水素発生量のマップを予め用意することで実現可能で

ある。

【0043】以上の例では、要求水素量を実現するための制御を説明した。本実施例は、水素を間欠的に生成させ、反応器20および分離器30に一旦蓄え、必要に応じて使うシステムとして構成することもできる。かかる場合には、要求水素量に関わらず、原料に所定の水を供給して反応させればよい。高いpHで原料を貯蔵しておき、反応器20内でpHを下げて反応を促進させるのである。水は、反応器20が一定の目標pHになるように、原料に対し一定の比率で供給すればよい。かかる構成においても、金属水素化合物と水を混合した流体の状態で原料を貯蔵できる利点は得られる。

【0044】第1実施例では、金属水素化合物と水とを混合した原料を貯蔵する場合を例示した。金属水素化合物と水とを分離貯蔵しておき、反応器20への運搬直前に混合するシステム構成としてもよい。つまり、反応器20よりも上流側に、金属水素化合物と水とをアルカリ性環境下で混合する混合器を設け、ここで混合された流体を反応器20に供給する構成を採ることも可能である。かかる構成では、流体で原料を供給することによる定量供給の容易化を図ることができる。また、実施例と異なり、混合状態で貯蔵する訳ではないため、反応率に対する許容値（図2中のHstr）は、比較的高く設定できる。従って、原料のpHは実施例に比べて若干低くすることができる。この結果、反応器20でそれほど希釈しなくても十分な反応速度を得ることが可能となる利点がある。

【0045】B. 第2実施例：

B1. システム構成：図5は第2実施例としての水素ガス生成システムの概略構成を示す説明図である。第2実施例では、pH制御は行わない。金属水素化合物の燃料は、タンク11Aに粉末状で貯蔵されている。燃料としては、第1実施例と同様、 $\text{NaBH}_4$ を用いる。燃料は、粉末を運搬可能なポンプ12Aによって反応器20Aに運搬される。かかるポンプ12Aとしては、超音波モータを利用した装置が知られている。制御ユニット10がポンプ12Aの駆動を制御することにより、燃料の供給量を制御することができる。燃料のタンク11Aから粉末が重力の作用で反応器20Aに供給される機構を適用してもよい。かかる場合には、供給路の開度をバルブ等で調整することにより、燃料の供給量を制御することができる。

【0046】反応器20Aには、水タンク13から、燃料を加水分解するための水が供給される。供給量は、制御ユニット10が、配管途中に設けられたバルブ14の開度を制御することによって制御される。

【0047】反応器20A内には、加水分解反応を促進する触媒が担持されている。本実施例では、ハニカムの担体に触媒を担持させ、反応器20A内に取り付けた。触媒を反応器20A内に充填してもよい。利用可能な触

媒としては、白金系、チタニア系、ルテニウム系、白金-チタニア系などが知られている。

【0048】反応器20Aに水とともに供給された燃料は触媒の作用によって、直ちに加水分解される。生成物が燃料の表面を覆い、分解が停止するという現象は、触媒の存在下ではほぼ生じない。生成された水素には、第1実施例と同様、水、生成物が含まれているため、分離器30で分離され、燃料電池1に供給される。分離器30で分離された水は、水タンク13に循環され、再び反応に供される。

【0049】B2. 水素ガス生成処理：図6は第2実施例における水素ガス生成処理のフローチャートである。制御ユニット10が実行する処理である。第2実施例では、反応器20Aに供給された燃料がほぼ全量反応可能な構成を採っているため、燃料の供給量と水素生成量とは一定の相関がある。本実施例では、かかる相関を利用して、水素要求量に応じた水素を生成する。

【0050】処理が開始されると、制御ユニット10は、水素要求量を入力し（ステップS30）、これに基づいて燃料、即ち金属水素化物の量と水の量を設定する（ステップS32）。燃料量、水量、生成される水素量は、複雑な相関関係になることが確認されているため、本実施例では、水素要求量に応じて燃料量、水量を与えるマップを予め用意し、これに基づいてそれぞれの供給量を設定するものとした。供給量は、反応器20Aの温度などの環境条件によっても変動するため、環境条件ごとにマップを備えた。図中では、温度別にマップを用意した例を示したが、その他の条件を加味して多角的にマップを備えてもよい。

【0051】こうして設定された燃料および水の供給量を実現するように、制御ユニット10は、ポンプ12A、バルブ14を制御する（ステップS34）。

【0052】第2実施例によれば、原料および水の供給量を制御することにより、要求に応じた水素を生成することができる。従って、生成された水素が使用前に遺漏したに、消費されずに残存するなどの無駄を回避できる。

【0053】第2実施例では、燃料と水の双方の量を制御する場合を例示した。反応器20Aに十分な量の水を蓄えておき、水素要求量に応じて燃料の供給量を制御するものとしてもよい。反応器20Aに十分な量の燃料を

貯蔵しておき、水素要求量に応じて水の供給量を制御するものとしてもよい。

【0054】金属水素化物は、加水分解の他、熱分解によって水素を生成することが知られている。第2実施例の構成において、水を供給する代わりに、反応器20Aを加熱して水素を生成する構成を採ることも可能である。この場合には、水素要求量に応じて加熱量を制御することにより、第2実施例と同様の利点を得ることができる。

10 【0055】第1実施例、第2実施例では、金属水素化物として $\text{NaBH}_4$ を用いた場合を例示したが、その他の種々の金属水素化物を利用可能である。生成された水素の用途は、燃料電池1への供給に限られない。

【0056】以上、本発明の種々の実施例について説明したが、本発明はこれらの実施例に限定されず、その趣旨を逸脱しない範囲で種々の構成を採ることができるというまでもない。例えば、以上の制御処理はソフトウェアで実現する他、ハードウェア的に実現するものとしてもよい。

20 【図面の簡単な説明】

【図1】第1実施例としての水素ガス生成システムの概略構成を示す説明図である。

【図2】反応速度のpH依存性を示す説明図である。

【図3】水素ガス生成処理のフローチャートである。

【図4】変形例としての水素ガス生成処理のフローチャートである。

【図5】第2実施例としての水素ガス生成システムの概略構成を示す説明図である。

30 【図6】第2実施例における水素ガス生成処理のフローチャートである。

【符号の説明】

10…制御ユニット

11…原料タンク

11A…タンク

12, 14…バルブ

12A…ポンプ

13…水タンク

14…バルブ

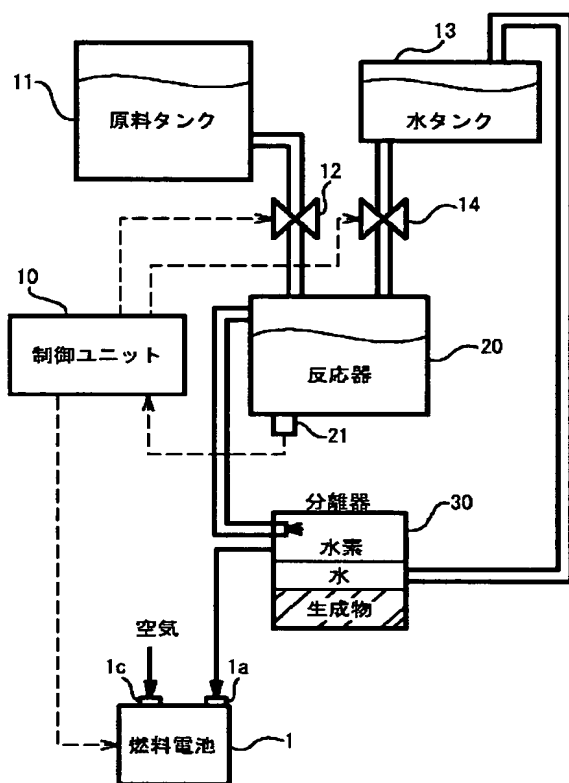
20…反応器

40 20A…反応器

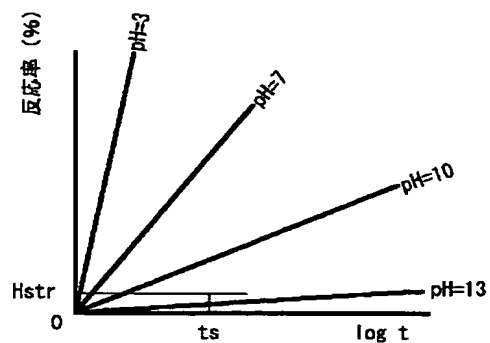
30…分離器



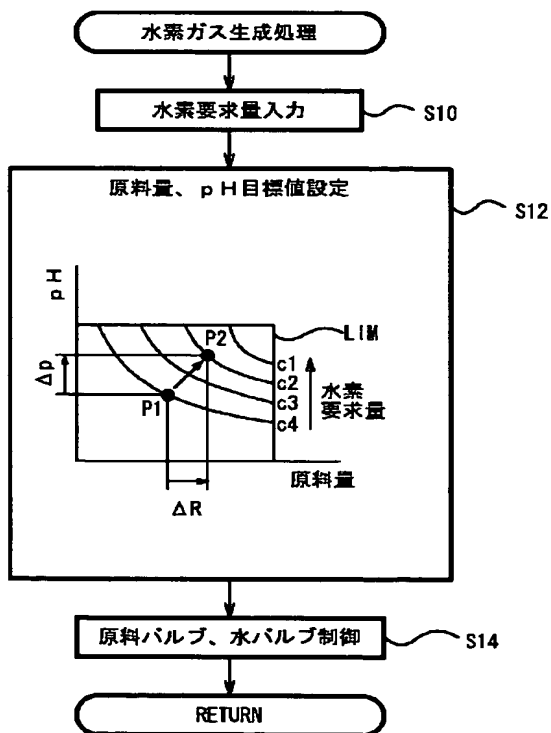
【図 1】



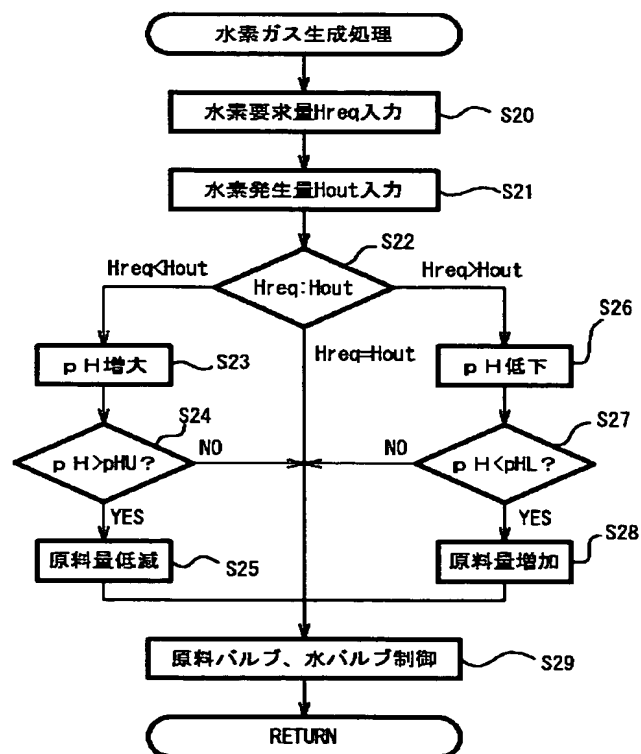
【図 2】



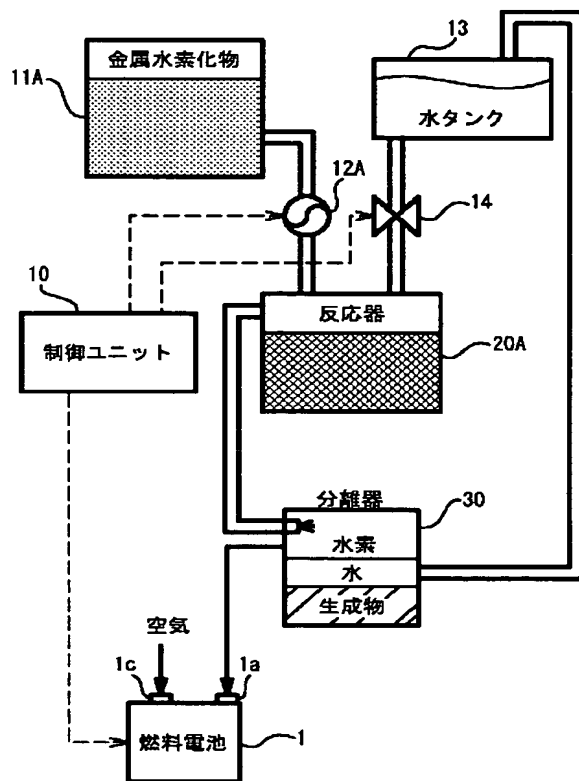
【図 3】



【図 4】



【図 5】



【図 6】

